

25. 6. 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 3 月 1 日

REC'D 19 AUG 2004

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 0 5 6 6 0 6  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 4 - 0 5 6 6 0 6 ]

WIPO PCT

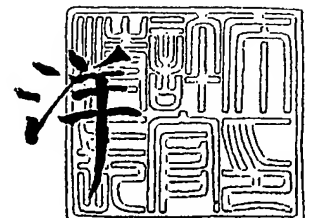
出 願 人  
Applicant(s): 谷 口 彬 雄  
東海ゴム工業株式会社

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 8 月 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 YP7955  
【提出日】 平成16年 3月 1日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【発明者】  
    【住所又は居所】 長野県上田市中央3-14-2-602  
    【氏名】 谷口 彬雄  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内  
    【氏名】 杉山 真人  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内  
    【氏名】 日比野 真吾  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内  
    【氏名】 竹内 哲也  
【発明者】  
    【住所又は居所】 愛知県小牧市東三丁目1番地 東海ゴム工業株式会社内  
    【氏名】 簗島 涼  
【特許出願人】  
    【識別番号】 599114025  
    【氏名又は名称】 谷口 彬雄  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000219602  
    【氏名又は名称】 東海ゴム工業株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100074675  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 柳川 泰男  
    【電話番号】 03-3358-1798  
【先の出願に基づく優先権主張】  
    【出願番号】 特願2003-181666  
    【出願日】 平成15年 6月25日  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 055435  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0105043

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、絶縁層、金属層、そして樹脂フィルムがこの順に積層された構成の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 2】**

金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 3】**

絶縁層の厚みが、10乃至1000nmの範囲にある請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 4】**

樹脂フィルムの表面に、さらに上記とは別の金属層が積層されている請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 5】**

上記不透明電極層と絶縁層との間に、該不透明電極層の側から上記とは別の絶縁層、そして金属層がこの順に付設されている請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 6】**

絶縁層が吸湿性材料からなる請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 7】**

絶縁層と金属層との間に吸湿性材料層が備えられている請求項1に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 8】**

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項6もしくは7に記載の有機エレクトロルミネセンス素子。

**【請求項 9】**

透明電極層を透明基板の表面に積層してなる電極基板、および少なくとも金属層、絶縁層、そして不透明電極層をこの順に樹脂フィルムの表面に積層してなる電極フィルムをそれぞれ用意する工程、但し、前記透明電極層および不透明電極層のうちの少なくとも一方の層の表面には、有機発光材料層を含む有機材料層が形成されている；該電極基板と電極フィルムとを、その透明電極層と不透明電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせる工程；および、重ね合わされた電極基板と電極フィルムとを加圧し、かつ有機材料層を加熱により軟化させて互いに接合する工程を含む有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法。

**【請求項 10】**

金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 11】**

絶縁層の厚みが、10乃至1000nmの範囲にある請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 12】**

樹脂フィルムの裏面に、上記とは別の金属層が積層されている請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 13】**

上記絶縁層と不透明電極層との間に、該絶縁層の側から上記とは別の金属層、そして絶縁層がこの順に付設されている請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 14】**

絶縁層が吸湿性材料からなる請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 15】**

金属層と絶縁層との間に吸湿性材料層が備えられている請求項9に記載の製造方法。

**【請求項 16】**

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項 14 もしくは 15 に記載の製造方法。

【請求項 17】

樹脂フィルムの表面に、少なくとも金属層、絶縁層、そして不透明電極層をこの順に積層してなる電極フィルム。

【請求項 18】

金属層の厚みが、10 乃至 500 nm の範囲にある請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 19】

絶縁層の厚みが 10 乃至 1000 nm の範囲にある請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 20】

樹脂フィルムの裏面に、上記とは別の金属層が積層されている請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 21】

上記絶縁層と不透明電極層との間に、該絶縁層の側から上記とは別の金属層、そして絶縁層がこの順に付設されている請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 22】

絶縁層が吸湿性材料からなる請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 23】

金属層と絶縁層との間に吸湿性材料層が備えられている請求項 17 に記載の電極フィルム。

【請求項 24】

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項 22 もしくは 23 に記載の電極フィルム。

【請求項 25】

請求項 17 乃 24 のうちのいずれかの項に記載の電極フィルムがロール状に巻き取られてなるロール状電極フィルム。

【請求項 26】

透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、樹脂フィルム、そして金属層がこの順に積層された構成の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 27】

金属層の厚みが、10 乃至 500 nm の範囲にある請求項 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 28】

不透明電極層と樹脂フィルムとの間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている請求項 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 29】

不透明電極層と樹脂フィルムとの間に、該不透明電極層側から絶縁層、そして吸湿性材料層がこの順に付設されている請求項 26 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 30】

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項 28 もしくは 29 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 31】

透明電極層を透明基板の表面に積層してなる電極基板、および樹脂フィルムの表面に不透明電極層を、そして裏面に金属層を積層してなる電極フィルムをそれぞれ用意する工程、但し、前記透明電極層および不透明電極層のうちの少なくとも一方の層の表面には、有機発光材料層を含む有機材料層が形成されている；該電極基板と電極フィルムとを、その透明電極層と不透明電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせる工程；および、重ね合わされた電極基板と電極フィルムとを加圧し、かつ有機材料層を加熱により軟化させて互いに接合する工程を含む有機エレクトロルミネッセンス素子の製造

方法。

【請求項 32】

金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある請求項31に記載の製造方法。

【請求項 33】

樹脂フィルムと不透明電極層との間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている請求項31に記載の製造方法。

【請求項 34】

樹脂フィルムと不透明電極層との間に、該樹脂フィルムの側から吸湿性材料層、そして絶縁層がこの順に付設されている請求項31に記載の製造方法。

【請求項 35】

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項33もしくは34に記載の製造方法。

【請求項 36】

樹脂フィルムの表面に不透明電極層を、そして裏面に金属層を積層してなる電極フィルム。

【請求項 37】

金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある請求項36に記載の電極フィルム。

【請求項 38】

樹脂フィルムと不透明電極層との間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている請求項36に記載の電極フィルム。

【請求項 39】

樹脂フィルムと不透明電極層との間に、該樹脂フィルムの側から吸湿性材料層、そして絶縁層がこの順に付設されている請求項36に記載の電極フィルム。

【請求項 40】

吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である請求項38もしくは39に記載の電極フィルム。

【請求項 41】

請求項36乃至40のうちのいずれかの項に記載の電極フィルムがロール状に巻き取られてなるロール状電極フィルム。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】有機エレクトロルミネッセンス素子、その製法及び電極フィルム

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子、その製法及び電極フィルムに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

有機エレクトロルミネッセンス素子は、透明なガラス基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層、そして不透明電極層が、この順に積層された基本構成を有する。通常、透明電極層は、ITO（錫ドープ酸化インジウム）に代表される透明導電性材料から形成され、陽電極層とされる。そして不透明電極層は、Mg-Ag合金に代表される金属材料から形成され、陰電極層とされる。

## 【0003】

有機エレクトロルミネッセンス素子は、その陽電極層から正孔を、そして陰電極層から電子を有機発光材料層の内部に注入し、有機発光材料層の内部にて正孔と電子とを再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際の光の放出（蛍光、燐光）により発光する発光素子である。有機発光材料層の内部にて発生した光は、透明なガラス基板の側から発光素子の外部に取り出される。

## 【0004】

有機発光材料層の内部にて再結合させる正孔と電子とのそれぞれを、有機発光材料層の内部に効率良く注入して、有機エレクトロルミネッセンス素子の発光効率を高くするために、有機発光材料層の陽電極層側の面に正孔輸送層を、あるいは有機材料層の陰電極層側の面に電子輸送層を付設することが知られている。正孔輸送層と電子輸送層とのそれぞれは、有機材料から形成される。このように、有機エレクトロルミネッセンス素子は、通常、その陽電極層と陰電極層との間に、少なくとも有機発光材料層を含む有機材料層を備えた構成とされる。

## 【0005】

有機エレクトロルミネッセンス素子の陰電極層は、有機材料層に効率良く電子を注入できる仕事関数の小さい（通常、4 eV以下）活性な金属材料から形成されるために、水分や酸素に触れると酸化して劣化し易い。このため、有機エレクトロルミネッセンス素子の内部に、大気中に存在する水分や酸素が侵入すると、陰電極層の劣化により発光素子の輝度が低下したり、あるいは陰電極層と有機材料層とが剥離して発光素子に非発光部が生成されたりするなどの問題を生じる場合がある。

## 【0006】

従来の有機エレクトロルミネッセンス素子は、例えば、発光素子が形成されたガラス基板と、この基板の周縁部にて低透湿性の接着剤により固定されたガラス板（以下、封止用ガラス板という）とから構成される空間の内部に気密に收容され、外気から遮断（封止）される。さらに、封止の後に前記空間に残存する水分を吸収するために、封止用ガラス板の内側面に吸湿性材料層を付設することは知られている。

## 【0007】

特許文献1には、アルカリ土類金属の酸化物からなる吸湿膜が開示されている。そしてこの吸湿膜を封止用ガラス板の内側面に付設することにより、有機エレクトロルミネッセンス素子内部への水分の侵入を抑制できるとされている。

## 【0008】

特許文献2には、有機金属化合物からなる乾燥剤が開示されている。そしてこの乾燥剤を有機溶媒に溶解した溶液を、封止用ガラス板の内側面に塗布、そして乾燥して吸湿性材料層を形成することにより、有機エレクトロルミネッセンス素子内部への水分の侵入を抑制できるとされている。

## 【0009】

特許文献3には、例えば、樹脂基板上に無機バリア膜を介して有機エレクトロルミネッ

センス素子を形成し、さらにその表面を無機パッシベーション膜で覆うことにより、発光素子内部への水分の侵入を抑制する方法が開示されている。具体的には、無機バリア膜としては窒化酸化シリコン膜が、そして無機パッシベーション膜としては窒化シリコン膜が用いられている。

【特許文献1】特開2000-260562号公報

【特許文献2】特開2003-144830号公報

【特許文献3】特開2002-100469号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

上記のように、封止用のガラス板を一個ずつ有機エレクトロルミネセンス素子に付設して発光素子内部への水分の侵入を抑制する方法は、発光素子の生産性が低いという問題を有している。また、有機エレクトロルミネセンス素子の表面を無機パッシベーション膜で覆う方法は、封止用のガラス板と同等の低い水分透過率を得るためには、無機パッシベーション膜の厚みを大きくする必要があり、発光素子の生産性が低いという問題を有している。

【0011】

本発明の目的は、発光素子内部への水分の侵入が抑制された有機エレクトロルミネセンス素子と、その効率の良い製法を提供することにある。

本発明の目的はまた、発光素子内部への水分の侵入が抑制された有機エレクトロルミネセンス素子を効率良く製造するために用いることのできる電極フィルムを提供することにもある。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明は、透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、絶縁層、金属層、そして樹脂フィルムがこの順に積層された構成の有機エレクトロルミネセンス素子にある。

【0013】

以下、このような構成の有機エレクトロルミネセンス素子を、第一の有機エレクトロルミネセンス素子と記載する。第一の有機エレクトロルミネセンス素子の好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 絶縁層の厚みが、10乃至1000nmの範囲にある。
- (3) 樹脂フィルムの表面に、さらに上記とは別の金属層が積層されている。
- (4) 不透明電極層と絶縁層との間に、不透明電極層の側から上記とは別の絶縁層、そして金属層がこの順に付設されている。
- (5) 絶縁層が吸湿性材料からなる。
- (6) 絶縁層と金属層との間に吸湿性材料層が備えられている。
- (7) 上記の吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

【0014】

本発明はまた、透明電極層を透明基板の表面に積層してなる電極基板、および少なくとも金属層、絶縁層、そして不透明電極層をこの順に樹脂フィルムの表面に積層してなる電極フィルムをそれぞれ用意する工程、但し、前記透明電極層および不透明電極層のうちの少なくとも一方の層の表面には、有機発光材料層を含む有機材料層が形成されている；前記電極基板と電極フィルムとを、その透明電極層と不透明電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせる工程；および、重ね合わされた電極基板と電極フィルムとを加圧し、かつ有機材料層を加熱により軟化させて互いに接合する工程を含む有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法にもある。

【0015】

以下、このような有機エレクトロルミネセンス素子の製造方法を、第一の製造方法と

記載する。第一の製造方法の好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 絶縁層の厚みが、10乃至1000nmの範囲にある。
- (3) 樹脂フィルムの裏面に、上記とは別の金属層が積層されている。
- (4) 絶縁層と不透明電極層との間に、絶縁層の側から上記とは別の金属層、そして絶縁層がこの順に付設されている。
- (5) 絶縁層が吸湿性材料からなる。
- (6) 金属層と絶縁層との間に吸湿性材料層が備えられている。
- (7) 上記の吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

#### 【0016】

本発明はまた、樹脂フィルムの表面に、少なくとも金属層、絶縁層、そして不透明電極層をこの順に積層してなる電極フィルムにもある。

#### 【0017】

以下、このような構成の電極フィルムを、第一の電極フィルムと記載する。第一の電極フィルムの好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 絶縁層の厚みが、10乃至1000nmの範囲にある。
- (3) 樹脂フィルムの裏面に、上記とは別の金属層が積層されている。
- (4) 絶縁層と不透明電極層との間に、絶縁層の側から上記とは別の金属層、そして絶縁層がこの順に付設されている。
- (5) 絶縁層が吸湿性材料からなる。
- (6) 金属層と絶縁層との間に吸湿性材料層が備えられている。
- (7) 吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

#### 【0018】

本発明はまた、上記の第一の電極フィルムがロール状に巻き取られてなるロール状電極フィルムにもある。

#### 【0019】

以下、このような構成のロール状電極フィルムを、第一のロール状電極フィルムと記載する。

#### 【0020】

本発明はまた、透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、樹脂フィルム、そして金属層がこの順に積層された構成の有機エレクトロルミネッセンス素子にもある。

#### 【0021】

以下、このような構成の有機エレクトロルミネッセンス素子を、第二の有機エレクトロルミネッセンス素子と記載する。第二の有機エレクトロルミネッセンス素子の好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 不透明電極層と樹脂フィルムとの間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている。
- (3) 不透明電極層と樹脂フィルムとの間に、前記不透明電極層の側から絶縁層、そして吸湿性材料層がこの順に付設されている。
- (4) 上記の吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

#### 【0022】

本発明はまた、透明電極層を透明基板の表面に積層してなる電極基板、および樹脂フィルムの表面に不透明電極層を、そして裏面に金属層を積層してなる電極フィルムをそれぞれ用意する工程、但し、前記透明電極層および不透明電極層のうちの少なくとも一方の層の表面には、有機発光材料層を含む有機材料層が形成されている；前記電極基板と電極フィルムとを、その透明電極層と不透明電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせる工程；および、重ね合わされた電極基板と電極フィルムとを加圧し、かつ有機材料層を加熱により軟化させて互いに接合する工程を含む有機エレクトロルミネッ



センス素子の製造方法にもある。

【0023】

以下、このような有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を、第二の製造方法と記載する。第二の製造方法の好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 樹脂フィルムと不透明電極層との間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている。
- (3) 樹脂フィルムと不透明電極層との間に、前記の樹脂フィルムの側から吸湿性材料層、そして絶縁層がこの順に付設されている。
- (4) 上記の吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

【0024】

本発明はまた、樹脂フィルムの表面に不透明電極層を、そして裏面に金属層を積層してなる電極フィルムにもある。

【0025】

以下、このような構成の電極フィルムを、第二の電極フィルムと記載する。第二の電極フィルムの好ましい態様は、下記の通りである。

- (1) 金属層の厚みが、10乃至500nmの範囲にある。
- (2) 樹脂フィルムと不透明電極層との間に絶縁性の吸湿性材料層が備えられている。
- (3) 樹脂フィルムと不透明電極層との間に、前記の樹脂フィルムの側から吸湿性材料層、そして絶縁層がこの順に付設されている。
- (4) 上記の吸湿性材料がアルカリ土類金属の酸化物である。

【0026】

本発明はまた、上記の第二の電極フィルムがロール状に巻き取られてなるロール状電極フィルムにもある。

【0027】

以下、このような構成のロール状電極フィルムを、第二のロール状電極フィルムと記載する。

【0028】

なお、本明細書において、「透明」とは、可視光の透過率が60%以上、好ましくは70%以上であることを意味する。また、「不透明」とは、可視光の透過率が30%以下、好ましくは20%以下であることを意味する。

【発明の効果】

【0029】

本発明の電極フィルムは、樹脂フィルムの表面に、金属層、絶縁層、そして不透明電極層がこの順に積層された基本構成を有している。そして本発明の電極フィルムは、その金属層により、樹脂フィルムの側からの水分の侵入が抑制され、そして優れた柔軟性を示すためにロール状に巻き取ることもできる。このような電極フィルム、あるいはロール状の電極フィルムを用いることにより、不透明電極層の側から発光素子内部への水分の侵入が抑制された、耐久性に優れる有機エレクトロルミネッセンス素子を効率良く生産することができる。さらに、電極フィルムの絶縁層を吸湿性材料から形成するか、あるいは金属層と絶縁層との間に吸湿性材料層を付設することにより、吸湿性材料が発光素子内部に残存する水分を吸収除去するために、得られる有機エレクトロルミネッセンス素子の耐久性をさらに向上させることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0030】

本発明の第一の有機エレクトロルミネッセンス（以下、ELと略する）素子は、透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、絶縁層、金属層、そして樹脂フィルムがこの順に積層された構成を有する。通常、有機EL素子の透明電極層は陽電極層とされ、そして不透明電極層は陰電極層とされることが一般的である。以下、本発明を、透明電極層が陽電極層であり、そして不透明電極層が陰電極層である場合を例として説明する。

## 【0031】

図1は、本発明の第一の有機EL素子の構成例を示す断面図である。第一の有機EL素子11は、透明基板12の表面に、陽電極層（透明電極層）15、有機発光材料層を含む有機材料層、陰電極層（不透明電極層）25、絶縁層24、金属層23、そして樹脂フィルム22がこの順に積層された構成を有している。有機EL素子11の有機材料層は、正孔輸送層16及び有機発光材料層17から構成されている。有機発光材料層17にて発生した光は、透明基板12の側から発光素子の外部に取り出される。図1に記入した矢印10は、光の取り出し方向を示している。

## 【0032】

透明基板12としては、低い透湿性を示す基板が用いられる。透明基板12の例としては、ガラス基板などのセラミック基板、および防湿処理が施された樹脂基板（もしくは樹脂フィルム）などが挙げられる。樹脂基板の防湿処理方法の例としては、樹脂基板の表面に低透湿膜を付設する方法が挙げられる。低透湿膜の例としては、酸化シリコン膜、窒化シリコン膜、窒化酸化シリコン膜、および金属膜が挙げられる。金属膜を用いる場合には、有機発光材料層にて発生した光を発光素子の外部に取り出すために、その厚みを可視光を透過させる程度に薄い厚みとする必要がある。このことから、低透湿膜として用いる金属膜の厚みは、数10nm以下であることが好ましい。

## 【0033】

有機EL素子11の周縁部は、周縁部からの発光素子内部への水分の侵入を抑制するために防湿処理が施される。防湿処理方法の代表例としては、有機EL素子の周縁部に低透湿性の樹脂層を形成する方法が挙げられる。低透湿性樹脂層は、常温硬化型あるいは紫外線硬化型の樹脂を発光素子の周縁部に塗布、そして硬化させることにより形成することができる。樹脂の代表例としては、エポキシ樹脂およびアクリル樹脂が挙げられる。これらの樹脂としては、例えば、上記の従来の有機EL素子の基板と封止用ガラス板とを接合するための接着剤に含まれる樹脂と同様のものを用いることができる。

## 【0034】

有機EL素子11は、その陰電極層25の表面に、絶縁層24、金属層23、そして樹脂フィルム22が積層されていることを特徴とする。陰電極層25の表面に絶縁層24を介して付設された金属層23は、金属材料から形成され、低い透湿性を示す。このように、有機EL素子11の有機発光材料層17にて発生した光を取り出さない側、すなわち光を透過させる必要のない陰電極層25の外側に金属層23を付設することにより、陰電極層25の側からの発光素子内部への水分の侵入を抑制することができる。また、陰電極層25の側からの発光素子内部への水分の侵入を抑制するために、樹脂フィルム22の表面（金属層23側とは逆の側の面）に、さらに上記金属層23とは別の金属層を積層することもできる。

## 【0035】

次に、図1の有機EL素子の製造に用いる電極フィルムについて説明する。図2は、図1の有機EL素子11の製造に用いる第一の電極フィルムの構成を示す断面図である。第一の電極フィルム21は、樹脂フィルム22の表面に、金属層23、絶縁層24、そして陰電極層（不透明電極層）25がこの順に積層された構成を有している。

## 【0036】

樹脂フィルム22の例としては、ポリエステルフィルム（例、ポリエチレンテレフタレートフィルム）、ポリカーボネートフィルム、ポリイミドフィルム、ポリエーテルスルホンフィルム、ポリエーテルイミドフィルム、ポリフェニレンサルファイドフィルム、ポリスルホンフィルム、ポリエーテルエーテルケトンフィルム、ポリアミドフィルム、ポリメタクリル酸メチルフィルム、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリアリレートフィルム、およびシクロオレフィンポリマーフィルムが挙げられる。

## 【0037】

樹脂フィルム22の厚みは、3乃至1000 $\mu$ mの範囲にあることが好ましく、10乃至500 $\mu$ mの範囲にあることがより好ましく、10乃至300 $\mu$ mの範囲にあることが

さらに好ましい。

【0038】

金属層 23 は、金属材料から形成される。金属材料は、低い透湿性と優れた柔軟性とを兼ね備えている。第一の電極フィルム 21 は、その金属層 23 により、その樹脂フィルム 22 の側からの水分の侵入が抑制されている。電極フィルム 21 は、その金属層 23 が柔軟であるために、ロール状に巻き取ることも可能である。樹脂フィルム 22 の側からの水分の侵入をさらに抑制するために、樹脂フィルムの裏面（金属層 23 側とは逆の側の面）に、さらに上記金属層 23 とは別の金属層を積層することもできる。

【0039】

金属層 23 を形成する金属材料の例としては、金、銀、銅、アルミニウム、チタン、パラジウム、白金、および前記金属材料のうちの少なくとも一種類を含む合金組成物が挙げられる。

【0040】

金属層 23 を形成する方法の代表例としては、真空蒸着法やスパッタ法などの乾式成膜法、およびグラビア印刷法やブレードコート法などの湿式成膜法が挙げられる。

【0041】

金属層 23 の厚みは、電極フィルム 21 をロール状にする場合にクラックが生じないように、5 乃至 500 nm の範囲にあることが好ましく、10 乃至 500 nm の範囲にあることがさらに好ましい。

【0042】

金属層 23 と陰電極層 25 との間に付設された絶縁層 24 は、金属層と陰電極層とが電氣的に接続されることを防止する。絶縁層 24 は、その表面に複数の陰電極層（例、ストライプ状の陰電極層）が形成された場合に、これらの陰電極層が金属層 23 を介して互いに電氣的に接続されて短絡することを防止する。

【0043】

絶縁層 24 の材料としては、公知の絶縁性材料を用いることができる。絶縁性材料の例としては、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Si}_3\text{N}_4$  などの金属酸化物材料、および常温硬化性、熱硬化性、あるいは光硬化性（好ましくは紫外線硬化性）の樹脂材料が挙げられる。樹脂材料の代表例としては、エポキシ樹脂およびアクリル樹脂が挙げられる。

【0044】

絶縁層 24 の形成方法の例としては、真空蒸着法やスパッタ法などの乾式成膜法、およびスクリーン印刷法、グラビア印刷法、あるいはインクジェット法などの湿式成膜法が挙げられる。

【0045】

絶縁層 24 の厚みは、10 乃至 1000 nm の範囲にあることが好ましい。絶縁層の厚みは、電極フィルム 21 をロール状にする場合にクラックが生じないように、絶縁層の材料の硬さに応じて適宜設定する。絶縁層 24 の厚みは、10 乃至 500 nm の範囲にあることが好ましく、10 乃至 180 nm の範囲にあることがより好ましく、10 乃至 150 nm の範囲にあることがさらに好ましい。

【0046】

陰電極層 25 の材料や厚みなどは、従来の有機 EL 素子の場合と同様である。陰電極層の材料や厚みなどについては、後述する。

【0047】

樹脂フィルム 22 と金属層 23 との密着性を向上させるために、これらの間に接着層を付設することもできる。接着層の材料としては、例えば、上記の絶縁層 24 を形成する絶縁性材料を用いることができる。接着層の好ましい厚みの範囲は、上記の絶縁層 24 の場合と同様である。

【0048】

図 3 は、本発明の第一の電極フィルムの別の構成例を示す断面図である。図 3 の電極フ

ィルム 31 の構成は、絶縁層 24 と陰電極層（不透明電極層）25 との間に、絶縁層 24 の側から前記とは別の金属層 33 と絶縁層 34 とが付設されていること以外は、図 2 の電極フィルム 21 と同様である。図 3 に示すように、電極フィルム 31 が備える二つの金属層 23、33 により、有機 EL 素子内部への水分や酸素の侵入をさらに抑制することができる。

#### 【0049】

図 9 は、本発明の第一の電極フィルムのさらに別の構成例を示す断面図である。図 9 の電極フィルム 91 は、樹脂フィルム 22 の表面に、金属層 23、吸湿性材料層 29、絶縁層 24、そして陰電極層 25 がこの順に積層された構成を有している。電極フィルム 91 の構成は、金属層 23 と絶縁層 24 との間に吸湿性材料層 29 が備えられていること以外は、図 2 の電極フィルム 21 と同様である。

#### 【0050】

吸湿性材料層 29 の材料としては、層状に形成が可能な公知の吸湿性材料を用いることができる。このような吸湿性材料の代表例としては、特許文献 1 に記載のアルカリ土類金属（Ca、Sr、Ba、Ra、Be、Mg）の酸化物、および特許文献 2 に記載のアルミニウムオキシドオクチレートに代表される有機金属化合物が挙げられる。

#### 【0051】

吸湿性材料層 29 をアルカリ土類金属の酸化物から形成する方法の例としては、電子ビーム蒸着法、およびスパッタ法が挙げられる。スパッタ法の場合には、アルカリ土類金属の過酸化物から形成されたターゲットを用いることが好ましい。吸湿性材料層は、過酸化ストロンチウム（ $\text{SrO}_2$ ）ターゲットを用いてスパッタ法により形成された、酸化ストロンチウム（ $\text{SrO}$ ）層であることが特に好ましい。

#### 【0052】

吸湿性材料層 29 を有機金属化合物から形成する方法の例としては、例えば、上記のアルミニウムオキシドオクチレートに代表される有機金属化合物を、トルエンやキシレンなどの有機溶媒に溶解した溶液を塗布あるいは印刷する方法が挙げられる。

#### 【0053】

吸湿性材料のさらに別の例としては、乾燥剤と樹脂材料との混合物が挙げられる。例えば、特開 2001-345175 号には、封止用ガラス板の表面に粉末固体状乾燥剤と樹脂材料との混合物を層状に塗布し、この混合物層を備えた封止用ガラス板を用いて有機 EL 素子を製造する方法が開示され、そして混合物層の形成方法の例として、BaO 粉末（乾燥剤）を加熱溶融したエチレン-酢酸ビニル共重合体中に混合分散し、これをドクターブレード法によって封止用ガラス板に塗布する方法が記載されている。特開 2001-57287 号公報には、乾燥剤と樹脂材料との混合物層付きの封止用ガラス板を備えた有機 EL 素子が開示され、この混合物層の形成方法の例として、 $\text{CaH}_2$ （乾燥剤）と硬化性の液状シリコンゴムとの混合液を封止用ガラス板に塗布する方法が記載されている。本発明の電極フィルムは、樹脂フィルム上に形成された金属層の表面に、例えば、上記各々の公報に記載の方法と同様にして乾燥剤と樹脂材料との混合物からなる吸湿性材料層を形成し、次いで絶縁層及び陰電極層を形成することによって製造することができる。

#### 【0054】

吸湿性材料層 29 の厚みは  $100\ \mu\text{m}$  以下であることが好ましく、 $0.1$  乃至  $30\ \mu\text{m}$  の範囲にあることがさらに好ましい。

#### 【0055】

吸湿性材料層 29 を備えた電極フィルム 91 を用いて製造された有機 EL 素子は、その金属層 23 により樹脂フィルム 22 の側からの発光素子内部への水分の侵入が抑制され、さらに吸湿性材料層 29 により電極基板と電極フィルムとを貼り合わせた後に発光素子内部に残存する水分が吸収されるため、陰電極層 25 の劣化がより効果的に抑制されて優れた耐久性を示す。そして吸湿性材料層を備えた電極フィルムを用いることにより、従来の有機 EL 素子の場合のように、封止用ガラスに吸湿性材料層を形成したのちに、これを用いて有機 EL 素子をつづつ封止する必要がないため、発光素子を効率良く製造すること

ができる。

#### 【0056】

なお、吸湿性材料が絶縁性を示す場合には、電極フィルム 91 に吸湿性材料層 29 を付設することなく、絶縁層 24 を絶縁性の吸湿性材料から形成することもできる。絶縁性の吸湿性材料の代表例としては、上記の特許文献 1 に記載のアルカリ土類金属の酸化物、および特許文献 2 に記載の有機金属化合物が挙げられる。

#### 【0057】

絶縁層 24 を絶縁性の吸湿性材料から形成する場合、絶縁層 24 の厚みは  $100\ \mu\text{m}$  以下であることが好ましく、 $0.1$  乃至  $30\ \mu\text{m}$  の範囲にあることがさらに好ましい。

#### 【0058】

図 4 は、本発明の第一のロール状電極フィルムの構成例を示す図である。図 4 のロール状電極フィルム 20 は、樹脂フィルム 22 の表面に、金属層 23、絶縁層 24、そしてストライプ状の陰電極層 25 が積層された電極フィルム 21 を、ロール状に巻き取ることにより構成される。このように、電極フィルム 21 をロール状に巻き取ることにより、陰電極層 25 が直接大気に接触することが防止され、陰電極層 25 の劣化を抑制することができる。

#### 【0059】

ロール状電極フィルム 20 は、陰電極層 25 の劣化を抑制するために、真空中もしくは不活性気体（例、窒素ガス）中にて電極フィルム 21 を巻き取ることにより、ロール状にすることが好ましい。ロール状電極フィルム 20 は、その全体を真空包装、あるいは不活性ガスを充填した状態で包装することがさらに好ましい。

#### 【0060】

また、図 4 に示すように、ロール状電極フィルム 20 の最外周を、樹脂フィルム 22 の表面に金属層 23 が積層された構成とすることも好ましい。図 4 に示すロール状電極フィルム 20 は、そのフィルムの全てが巻き取られた状態において、ロールの最外周が金属層 23 により覆われる。このように、ロールの巻きの外側の一周（例、最外周）を金属層 23 で覆うことにより、ロール状電極フィルム 20 の外周面からの水分の侵入による陰電極層 25 の劣化をさらに抑制することができる。また、ロール状電極フィルム 20 の巻きの外側の二周以上を、樹脂フィルムの表面に金属層が積層された構成とすることもできる。

#### 【0061】

ロール状電極フィルム 20 のロール側面からの水分の侵入を抑えるために、電極フィルムを、 $2.5 \times 10^5$  乃至  $4.0 \times 10^7$   $[\text{N}/\text{m}^2]$  の張力を付与しながら巻き取ってロール状にすることが好ましい。このような張力の付与により、ロール状に巻かれた状態で互いに隣接している電極フィルム同士が十分に密着するために、ロール状電極フィルムのロール側面からの水分の侵入がさらに抑制される。

#### 【0062】

電極フィルム 21 は、紙製、樹脂製、あるいは金属製の芯管などに巻き取ってロール状とされることが好ましい。ロール状電極フィルムの芯管の側からの水分の侵入を抑制するために、金属製の芯管、あるいは表面が金属膜により被覆された芯管を用いることが好ましい。芯管の直径は、 $30$  乃至  $300\ \text{mm}$  の範囲にあることが好ましく、 $50$  乃至  $200\ \text{mm}$  の範囲にあることがより好ましく、 $70$  乃至  $175\ \text{mm}$  の範囲にあることがさらに好ましい。

#### 【0063】

次に、第一の電極フィルムを用いた有機 EL 素子の製造方法について説明する。有機 EL 素子は、例えば、透明基板の表面に、透明陽電極層、そして有機発光材料層を含む有機材料層が積層された構成の電極基板と、上記の第一の電極フィルムとを、その陽電極層と陰電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせ、そして互いに接合することにより作製される。

#### 【0064】

図 5 は、本発明の有機 EL 素子の製造方法（第一の製造方法）の一例を示す図である。

図 5 に示す第一の製造方法においては、先ず、ガラス基板（透明基板）52 の表面に、陽電極層（透明電極層）55、そして有機材料層 56 が積層された構成の電極基板 51 と、図 4 のロール状電極フィルム 20 とが用意される。図 5 においては、ロール状電極フィルム 20 の金属層と絶縁層の記載は省略した。

#### 【0065】

電極基板 51 は、基板搬送用フィルム 50 の表面に配置される。電極基板 51 と電極フィルム 21 とは、その陽電極層 55 と陰電極層 25 との間に有機材料層 56 が配置されるようにして互いに重ね合わされた状態で一對の加熱ロール 57a、57b の間を通過する。この加熱ロール 57a、57b により、重ね合わされた電極基板 51 と電極フィルム 21 とが加圧かつ加熱される。この加熱により有機材料層 56 が軟化して、電極基板 51 と電極フィルム 21 とが互いに接合され、有機 EL 素子 58 が作製される。このように、ロール状電極フィルム 20 を用いることにより、従来のように封止用のガラス板を用いることなく、発光素子内部への水分の侵入が抑制された有機 EL 素子を、連続的かつ効率良く作製することができる。このようにして連続的に作製された複数個の有機 EL 素子 58 は、発光素子毎に切断され、その周縁部には、上記のような防湿処理が施される。

#### 【0066】

図 6 は、本発明の有機 EL 素子の製造方法（第一の製造方法）の別の一例を示す図である。図 6 の製造方法においては、先ず、透明フィルム（透明基板）62 の表面に、陽電極層 65、そして有機材料層 66 が積層された構成の電極基板 61 がロール状に巻き取られた構成のロール状電極基板 60 と、図 4 のロール状電極フィルム 20 とが用意される。図 6 においては、ロール状電極フィルム 20 の金属層と絶縁層の記載は省略した。

#### 【0067】

電極基板 61 の透明フィルム 62 としては、上記の低透湿膜を備えた樹脂フィルムなどが用いられる。

#### 【0068】

電極基板 61 と電極フィルム 21 とは、その陽電極層 65 と陰電極層 25 との間に有機材料層 66 が配置されるようにして互いに重ね合わされた状態で、一對の加熱ロール 57a、57b の間を通過する。この加熱ロール 57a、57b により、重ね合わされた電極基板 61 と電極フィルム 21 とが加圧かつ加熱される。この加熱により有機材料層 66 が軟化して、電極基板 61 と電極フィルム 21 とが互いに接合され、有機 EL 素子 68 が作製される。このようにして連続的に作製された複数個の有機 EL 素子 68 は、発光素子毎に切断され、その周縁部には防湿処理が施される。

#### 【0069】

次に、本発明の第二の有機 EL 素子について説明する。第二の有機 EL 素子は、透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、樹脂フィルム、そして金属層がこの順に積層された構成を有する。以下、第二の有機 EL 素子を、透明電極層が陽電極層であり、そして不透明電極層が陰電極層である場合を例として説明する。

#### 【0070】

図 7 は、第二の有機 EL 素子の構成例を示す断面図である。第二の有機 EL 素子 71 は、透明基板 12 の表面に、陽電極層（透明電極層）15、有機発光材料層を含む有機材料層、陰電極層（不透明電極層）25、樹脂フィルム 22、そして金属層 23 がこの順に積層された構成を有している。有機 EL 素子 71 の有機材料層は、正孔輸送層 16 及び有機発光材料層 17 から構成されている。

#### 【0071】

図 7 の有機 EL 素子の構成は、樹脂フィルム 22 の側からの発光素子内部への水分の侵入を抑制する金属層 23 が、樹脂フィルムの表面（陰電極層 25 の側とは逆の側の面）に積層されていること以外は、図 1 の有機 EL 素子と同様である。また、図 7 の構成の有機 EL 素子の場合、金属層 23 と陰電極層 25 とは樹脂フィルム 22 により電氣的に絶縁されているために、絶縁層を付設する必要はない。



## 【0072】

図7の有機EL素子71は、発光素子の有機発光材料層17にて発生した光を取り出さない側、すなわち光を透過させる必要のない陰電極層25の外側に、樹脂フィルム22を介して金属層23を付設することによって、陰電極層25の側からの発光素子内部への水分の侵入が抑制されている。

## 【0073】

図8は、図7の有機EL素子の製造に用いる第二の電極フィルムの構成を示す断面図である。電極フィルム81は、樹脂フィルム22の表面に陰電極層（不透明電極層）25が、そして裏面に金属層23が積層された構成を有している。この第二の電極フィルム81をロール状に巻き取ることにより、本発明の第二のロール状電極フィルムが構成される。

## 【0074】

次に、第二の電極フィルムを用いた有機EL素子の製造方法（第二の製造方法）について説明する。有機EL素子は、例えば、透明基板の表面に、陽電極層（透明電極層）、そして有機発光材料層を含む有機材料層が積層された構成の電極基板と、上記第二の電極フィルムとを、その陽電極層と陰電極層との間に前記有機材料層が配置されるようにして重ね合わせ、そして互いに接合することにより作製される。第二の製造方法は、第二の電極フィルムを用いること以外は、第一の製造方法と同様にして実施することができ、そして第一の製造方法の場合と同様に、発光素子内部への水分の侵入が抑制された有機EL素子を、連続的かつ効率良く作製することができる。

## 【0075】

図10は、本発明の第二の電極フィルムの別の構成例を示す断面図である。図10の電極フィルム101は、樹脂フィルム22の表面に、吸湿性材料層29、絶縁層24、そして陰電極層25がこの順に積層され、そして裏面に金属層23が積層された構成を有している。電極フィルム101の構成は、樹脂フィルム22と不透明電極層25との間に、樹脂フィルム22の側から吸湿性材料層29、そして絶縁層24がこの順に積層されていること以外は、図8の電極フィルム81と同様である。図10の電極フィルムの吸湿性材料層29の材料や形成方法は、図9の電極フィルム91の場合と同様である。

## 【0076】

図10の吸湿性材料層29を備えた電極フィルム101を用いて製造された有機EL素子は、図9の電極フィルム91の場合と同様に、その金属層23により樹脂フィルム22の側からの発光素子内部への水分の侵入が抑制され、さらに吸湿性材料層29により電極基板と電極フィルムとを貼り合わせた後に発光素子内部に残存する水分が吸収されるため、陰電極層25の劣化がより効果的に抑制されて優れた耐久性を示す。吸湿性材料層を備えた電極フィルムを用いることにより、有機EL素子を効率良く製造することができる。

## 【0077】

また、図9の電極フィルム91の場合と同様に、図10の電極フィルム101の吸湿性材料層29を付設することなく、絶縁層24を絶縁性の吸湿性材料から形成することもできる。

## 【0078】

次に、本発明の有機EL素子の層構成や、陽電極層、有機材料層、および陰電極層の材料などについて説明する。本発明の有機EL素子の陽電極層、有機材料層、そして陰電極層は、公知の有機EL素子の場合と同様にして形成することができる。有機EL素子については、「有機LED素子の残された研究課題と実用化戦略」（ぶんしん出版、1999年）及び「光・電子機能有機材料ハンドブック」（朝倉書店、1997年）などに詳しい記載がある。

## 【0079】

有機EL素子の有機材料層は、少なくとも有機発光材料層を含む一層あるいは二層以上の層から構成される。前記のように、有機EL素子の発光効率を高くするために、有機発光材料層の陽電極層側の面に正孔輸送層を、あるいは有機材料層の陰電極層側の面に電子輸送層を付設することが知られている。以下に、本発明の有機EL素子の層構成の例を示

す。

【0080】

第一の有機EL素子の層構成の例は、下記の通りである。

- (a) 透明基板／陽電極層／有機発光材料層／陰電極層／絶縁層／金属層／樹脂フィルム
- (b) 透明基板／陽電極層／正孔輸送層／有機発光材料層／陰電極層／絶縁層／金属層／樹脂フィルム
- (c) 透明基板／陽電極層／有機発光材料層／電子輸送層／陰電極層／絶縁層／金属層／樹脂フィルム
- (d) 透明基板／陽電極層／正孔輸送層／有機発光材料層／電子輸送層／陰電極層／絶縁層／金属層／樹脂フィルム

【0081】

第二の有機EL素子の層構成の例は、下記の通りである。

- (a) 透明基板／陽電極層／有機発光材料層／陰電極層／樹脂フィルム／金属層
- (b) 透明基板／陽電極層／正孔輸送層／有機発光材料層／陰電極層／樹脂フィルム／金属層
- (c) 透明基板／陽電極層／有機発光材料層／電子輸送層／陰電極層／樹脂フィルム／金属層
- (d) 透明基板／陽電極層／正孔輸送層／有機発光材料層／電子輸送層／陰電極層／樹脂フィルム／金属層

【0082】

また、有機EL素子の陽電極層と陰電極層との間には、発光素子の発光特性などを改良するために、上記の正孔輸送層や電子輸送層の他にも様々な層（例えば、陽電極層と陰電極層のそれぞれの有機材料層側の面に付設される正孔注入層や電子注入層など）を付設することができる。これらの各々の層を形成する材料などは、後に詳しく説明する。

【0083】

上記のように、本発明の有機EL素子を、陽電極層を有する電極基板と、陰電極層を有する電極フィルムとの貼り合わせにより作製する場合、有機発光材料層を含む有機材料層は、陽電極層の表面に付設しても良いし、陰電極層の表面に付設しても良い。また、有機材料層を層平面に沿って分割した一方の側の有機材料層を、その分割面が頂面となるようにして陽電極層の表面に付設し、そして他方の側の有機材料層を、その分割面を頂面として陰電極層の表面に付設しても良い。この場合、有機材料層は、各々の層の界面にて分割されてもよいし、あるいは所定の一層の厚み方向の途中の位置にて層の平面に沿って分割されてもよい（例えば、上記（a）の層構成の場合、有機発光材料層が層の平面に沿って二つに分割されてもよい）。

【0084】

電極基板と電極フィルムとを貼り合わせる際には、陽電極層と陰電極層のうちの少なくとも一方の層の表面に付設された有機材料層を、加熱により軟化させる。有機材料層を加熱により軟化させる場合、加熱の温度が高すぎると、電極基板と電極フィルムとを貼り合わせる際に軟化させた層の厚みが大きく変動する。逆に加熱の温度が低すぎると、電極基板と電極フィルムとを互いに強固に接合することができない。このため、有機材料層の加熱温度は、加熱により軟化させる層のガラス転移点 $\pm 25^{\circ}\text{C}$ の範囲にあることが好ましく、ガラス転移点 $\pm 20^{\circ}\text{C}$ の範囲にあることがさらに好ましい。

【0085】

陽電極層は、仕事関数の大きい（ $4\text{ eV}$ 以上）金属、導電性化合物、又はこれらの混合物などから形成される。陽電極層を形成する材料の代表例としては、ITO（錫ドープ酸化インジウム）及びIZO（インジウム亜鉛酸化物）が挙げられる。

【0086】

陽電極層の厚みは、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが一般的であり、 $200\text{ nm}$ 以下であることが好ましい。陽電極層の抵抗は、数百 $\Omega/\text{sq.}$ 以下であることが好ましい。陽電極層を形成する方法の例としては、真空蒸着法、直流（DC）スパッタ法、高周波（RF）スパ



ッタ法、スピンコート法、キャスト法、LB法、パイロゾル法、およびスプレー法などが挙げられる。

【0087】

正孔輸送層の材料の例としては、テトラアリールベンジシン化合物、芳香族アミン類、ピラゾリン誘導体、およびトリフェニレン誘導体などが挙げられる。

【0088】

正孔輸送層の厚みは、2乃至200nmの範囲にあることが好ましい。正孔輸送層を形成する方法の例としては、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法、および印刷法などが挙げられる。

【0089】

正孔輸送層には、その正孔移動度を改善するために、電子受容性アクセプタを添加することが好ましい。電子受容性アクセプタの例としては、ハロゲン化金属、ルイス酸、および有機酸などが挙げられる。電子受容性アクセプタが添加された正孔輸送層については、特開平11-283750号公報に記載がある。

【0090】

有機発光材料層は、有機発光材料から形成するか、キャリア輸送性（正孔輸送性、電子輸送性、または両性輸送性）を示す有機材料（以下、ホスト材料と記載する）に少量の有機発光材料を添加した材料から形成される。有機発光材料層に用いる有機発光材料の選択により、有機EL素子の発光色を容易に設定することができる。

【0091】

有機発光材料層を有機発光材料から形成する場合、有機発光材料としては、成膜性に優れ、膜の安定性に優れた材料が用いられる。このような有機発光材料としては、Alq<sub>3</sub>（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）に代表される金属錯体、ポリフェニレンビニレン（PPV）誘導体、ポリフルオレン誘導体などが用いられる。ホスト材料と共に用いる有機発光材料としては、添加量が少ないために、前記の有機発光材料の他に、単独では安定な薄膜を形成し難い蛍光色素なども用いることができる。蛍光色素の例としては、クマリン、DCM誘導体、キナクリドン、ペリレン、およびルブレンなどが挙げられる。ホスト材料の例としては、前記のAlq<sub>3</sub>、TPD（トリフェニルジアミン）、電子輸送性のオキサジアゾール誘導体（PBD）、ポリカーボネート系共重合体、およびポリビニルカルバゾールなどが挙げられる。また、上記のように有機発光材料層を有機発光材料から形成する場合にも、発光色を調節するために、蛍光色素などの有機発光材料を少量添加することもできる。

【0092】

有機発光材料層の厚みは、実用的な発光輝度を得るために、200nm以下であることが好ましい。有機発光材料層は、正孔輸送層と同様の方法により形成することができる。

【0093】

電子輸送層の材料の例としては、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンピリレンなどの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、およびスチルベン誘導体などの電子輸送性材料が挙げられる。また、トリス（8-ヒドロキシキノリン）アルミニウム（Alq）などのアルミキノリノール錯体を用いることもできる。

【0094】

電子輸送層の厚みは、5乃至300nmの範囲にあることが好ましい。電子輸送層は、正孔輸送層と同様の方法により形成することができる。

【0095】

陰電極層は、仕事関数の小さい（4eV以下）金属、合金組成物、導電性化合物、又はこれらの混合物などから形成される。陰電極層の材料の例としては、Al、Ti、In、Na、K、Mg、Li、Cs、Rbおよび希土類金属などの金属、Na-K合金、Mg-

Ag合金、Mg-Cu合金、およびAl-Li合金などの合金組成物が挙げられる。

【0096】

陰電極層の厚みは、 $1\mu\text{m}$ 以下であることが一般的であり、 $200\text{nm}$ 以下であることがより好ましい。陰電極層の抵抗は、 $\text{数百}\Omega/\text{sq.}$ 以下であることが好ましい。陰電極層は、陽電極層と同様の方法により形成することができる。

【0097】

陽電極層の有機材料層側の面には、正孔注入層が付設されていてもよい。同様に、陰電極層の有機材料層側の面には、電子注入層が付設されていてもよい。これらの注入層は、電極層からより多くの電荷（正孔もしくは電子）を有機材料層に注入する機能を有している。また、注入層は、電極層表面の粗さを緩和したり、有機EL素子の駆動電圧を低下させる機能も有している。

【0098】

正孔注入層の材料の代表例としては、銅フタロシアニン（CuPc）が、そして電子注入層の材料の代表例としては、LiF（フッ化リチウム）などのアルカリ金属化合物が挙げられる。正孔注入層は陽極バッファ層と、電子注入層は陰極バッファ層とも呼ばれ、これらの層の詳細については、「有機LED素子の残された研究課題と実用化戦略」（ぶんしん出版、1999年、p44-45）などの文献に記載されている。

【実施例】

【0099】

[実施例1]

ロール状のPETフィルム（フィルム幅： $25\text{cm}$ 、厚み： $0.1\text{mm}$ ）を、巻き取りリールの回転駆動により走行させながら、その表面に、マグネトロンスパッタ装置により厚みが $100\text{nm}$ の銀薄膜（金属層）、そして厚みが $20\text{nm}$ の酸化チタン薄膜（絶縁層）を成膜した。

【0100】

上記の銀薄膜は、スパッタリングターゲットとして銀を、そしてスパッタリングガスとしてアルゴンガスを用いて成膜した。また、上記の酸化チタン薄膜は、スパッタリングターゲットとしてチタンを、そしてスパッタリングガスとしてアルゴンと酸素との混合ガスを用いて成膜した。

【0101】

次に、フィルムの走行を停止させ、酸化チタン薄膜の表面にメタルマスクを配置した。そしてマグネトロンスパッタ装置を用いて、厚みが $200\text{nm}$ のMg-Ag合金薄膜を成膜した。Mg-Ag合金薄膜は、スパッタリングターゲットとしてMg-Ag合金を、そしてスパッタリングガスとしてアルゴンガスを用いて成膜した。そしてメタルマスクを取り除くことにより、フィルムの長さ方向に伸びるストライプ状のMg-Ag薄膜（陰電極層）を形成した。このようにして、電極フィルムを作製した。

【0102】

作製した電極フィルムを、巻き取りリールにより $1.37\times 10^6\text{N/m}^2$ の張力を付与しながら、真空中にてロール状に巻き取ることにより、ロール状電極フィルムを作製した。ロール状電極フィルムの巻きの最外周は、PETフィルム表面に金属層が積層された構成とした。この構成によりロール状電極フィルムの外周面からの水分の侵入が抑制される。

【0103】

[実施例2]

ストライプ状のITO膜（透明陽電極層）が形成されたガラス基板を洗浄した。ITO膜の表面に、正孔輸送層形成用の塗布液（PEDOT/PSS水溶液、Bayer AG Leverkusen社製）を、回転数 $3500\text{rpm}$ で30秒間の条件でスピンコートし、これを $130^\circ\text{C}$ の真空オーブン中で1時間乾燥することにより、厚みが $50\text{nm}$ の正孔輸送層を形成した。

【0104】

有機発光材料（Green K、American Dye Source社製）を、キシレンに1.5質量%の濃

度で溶解して有機発光材料層形成用の塗布液を作製した。上記の正孔輸送層を形成する場合と同様にして、作製した有機発光材料層形成用の塗布液を、正孔輸送層の表面にスピコート、そして乾燥することにより、厚みが50 nmの有機発光材料層を形成した。

#### 【0105】

有機発光材料層が形成された基板（電極基板）と、実施例1で作製した電極フィルムとを、陽電極層と陰電極層との間に有機材料層（正孔輸送層及び有機発光材料層）が配置され、そしてこれらの電極層のストライプが互いに交差するようにして重ね合わせた。そして重ね合わされたガラス基板と電極フィルムとを、温度が140℃に設定された二本の加熱ロールの間を通過させて加圧し、有機発光材料層を軟化させて互いに接合した。このようにして、有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

#### 【0106】

##### [実施例3]

実施例1と同様にして、ロール状のPETフィルムを、巻き取りリールの回転駆動により走行させながら、その表面に、マグネトロンスパッタ装置により厚みが30 nmの酸化チタン薄膜、厚みが20 nmの銀薄膜（金属層）、そして厚みが30 nmの酸化チタン薄膜（絶縁層）を成膜した。

#### 【0107】

次に、フィルムの走行を停止させ、酸化チタン薄膜の表面にメタルマスクを配置した。そしてマグネトロンスパッタ装置を用いて、厚みが160 nmのITO薄膜を成膜した。ITO薄膜は、スパッタリングターゲットとしてITOを、そしてスパッタリングガスとしてアルゴンと酸素との混合ガスを用いて成膜した。そしてメタルマスクを取り除くことにより、フィルムの幅方向に伸びるストライプ状のITO薄膜（透明陽電極層）を形成した。

#### 【0108】

次に、ITO薄膜の表面に、実施例2で用いた正孔輸送層形成用の塗布液をマイクログラビアコート法により塗布、そして乾燥をして、厚みが50 nmの正孔輸送層を形成した。同様にして、正孔輸送層の表面に、実施例2で用いた有機発光材料層形成用の塗布液をマイクログラビアコート法により塗布、そして乾燥をして、厚みが50 nmの有機発光材料層を形成した。このようにして電極基板を作製した。

#### 【0109】

作製した電極基板を、実施例1の電極フィルムと同様の条件で巻き取ることにより、ロール状の電極基板を作製した。ロール状電極基板の巻き外側の一周は、PETフィルム表面に金属層が積層された構成とした。この構成によりロール状電極基板の外周面からの水分の侵入が抑制される。

#### 【0110】

作製した電極基板と、実施例1で作製した電極フィルムとを、陽電極層と陰電極層との間に有機材料層（正孔輸送層及び有機発光材料層）が配置され、そしてこれらの電極層のストライプが互いに交差するようにして重ね合わせた。そして重ね合わされた電極基板と電極フィルムとを、温度が140℃に設定された二本の加熱ロールの間を通過させて加圧し、有機発光材料層を軟化させて互いに接合した。このようにして、有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

#### 【0111】

##### [実施例4]

実施例1と同様にして、ロール状のPETフィルムを、巻き取りリールの回転駆動により走行させながら、その表面に、マグネトロンスパッタ装置により厚みが100 nmの銀薄膜（金属層）、厚みが1 μmの酸化ストロンチウム（SrO）薄膜（吸湿性材料層）、そして厚みが20 nmの酸化チタン薄膜（絶縁層）を成膜した。

#### 【0112】

上記の酸化ストロンチウム薄膜は、スパッタリングターゲットとして過酸化ストロンチウム（SrO<sub>2</sub>）粉末の焼結体を、そしてスパッタリングガスとしてアルゴンガスを用い

て成膜した。

【0113】

続けて、酸化チタン薄膜の表面に、実施例1と同様にして厚みが200nmのストライプ状のMg-Ag薄膜（陰電極層）を形成して電極フィルムを作製した。そして作製した電極フィルムを、実施例1と同様の条件で巻き取ってロール状電極フィルムを作製した。

【0114】

作製されたロール状電極フィルムを用いること以外は実施例2と同様にして、電極基板と電極フィルムとを貼り合わせて有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【0115】

[実施例5]

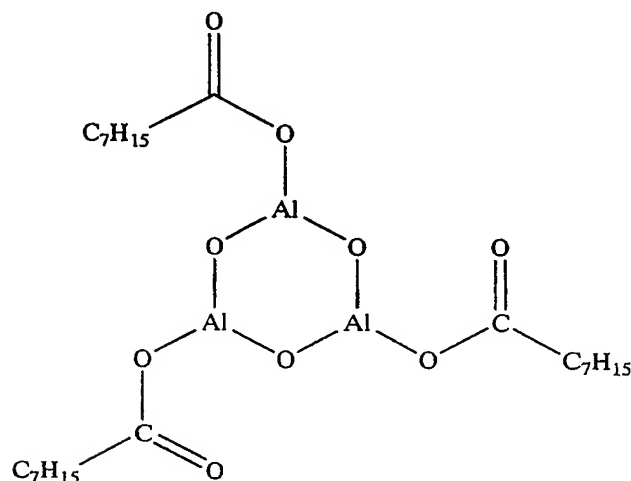
実施例1と同様にして、ロール状のPETフィルムを、巻き取りリールの回転駆動により走行させながら、その表面に、マグネトロンスパッタ装置により厚みが100nmの銀薄膜（金属層）を成膜し、これをロール状に巻き取った。

【0116】

得られたロール状のフィルムを、ドライボックス内に配置された巻き出し機に装着し、そして巻き取り機によりフィルムを巻き取りながら、フィルムの金属層表面に、下記の化学式で示されるアルミニウムオキサidoクチレート（48質量%キシレン溶液を、マイクログラビア法により塗布、そして乾燥して、厚みが30μmの吸湿性材料層を形成し、これを巻き取り機によりロール状に巻き取った。

【0117】

【化1】



【0118】

次に、吸湿性材料層が形成されたロール状のフィルムを、巻き取りリールの回転駆動により走行させながら、吸湿性材料層の表面に、マグネトロンスパッタ装置により厚みが20nmの酸化チタン薄膜（絶縁層）、そしてメタルマスクを介して厚みが200nmの、フィルムの長さ方向に伸びるストライプ状のMg-Ag薄膜（陰電極層）を形成して電極フィルムを作製した。そして作製した電極フィルムを、実施例1と同様の条件で巻き取ってロール状電極フィルムを作製した。

【0119】

作製されたロール状電極フィルムを用いること以外は実施例2と同様にして、電極基板と電極フィルムを貼り合わせて有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【0120】

[実施例6]

実施例1と同様にして、マグネトロンスパッタ装置を用いて、PETフィルムの表面に銀薄膜（金属層）を形成した。銀薄膜が形成されたPETフィルムをマグネトロンスパッタ

タ装置から取り出し、この銀薄膜の表面に熱硬化性のアクリル樹脂を含む溶液をマイクログラビア法により塗布、乾燥、そして熱硬化させ、厚みが500nmの硬化樹脂層（絶縁層）を形成した。次いで、絶縁層の表面に、実施例1と同様にしてストライプ状のMg-Ag薄膜を形成して電極フィルムを作製した。得られた電極フィルムを用いること以外は実施例2と同様にして、電極基板と電極フィルムとを互いに接合することにより有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。

【図面の簡単な説明】

【0121】

【図1】本発明の第一の有機エレクトロルミネッセンス素子の構成例を示す断面図である。

【図2】図1の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造に用いる、本発明の第一の電極フィルムの構成を示す断面図である。

【図3】本発明の第一の電極フィルムの別の構成例を示す断面図である。

【図4】本発明の第一のロール状電極フィルムの構成例を示す斜視図である。

【図5】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法（第一の方法）の一例を示す図である。

【図6】本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法（第一の方法）の別の一例を示す図である。

【図7】本発明の第二の有機エレクトロルミネッセンス素子の構成例を示す断面図である。

【図8】図7の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造に用いる、本発明の第二の電極フィルムの構成例を示す断面図である。

【図9】本発明の第一の電極フィルムのさらに別の構成例を示す断面図である。

【図10】本発明の第二の電極フィルムの別の構成例を示す断面図である。

【符号の説明】

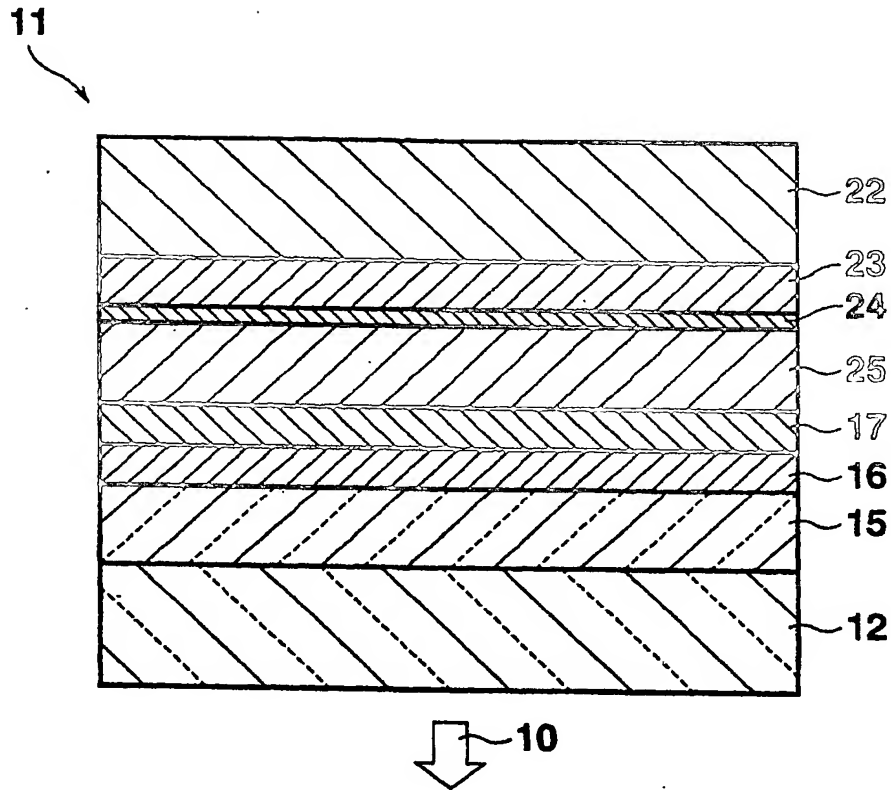
【0122】

- 11 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 12 透明基板
- 15 陽電極層
- 16 正孔輸送層
- 17 有機発光材料層
- 20 ロール状電極フィルム
- 21 電極フィルム
- 22 樹脂フィルム
- 23 金属層
- 24 絶縁層
- 25 陰電極層
- 29 吸湿性材料層
- 31 電極フィルム
- 33 金属層
- 34 絶縁層
- 50 基板搬送用フィルム
- 51 電極基板
- 52 透明基板
- 55 陽電極層
- 56 有機材料層
- 57 a、57 b 加熱ロール
- 58 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 59 電極フィルムの移動方向を示す矢印
- 60 ロール状電極基板

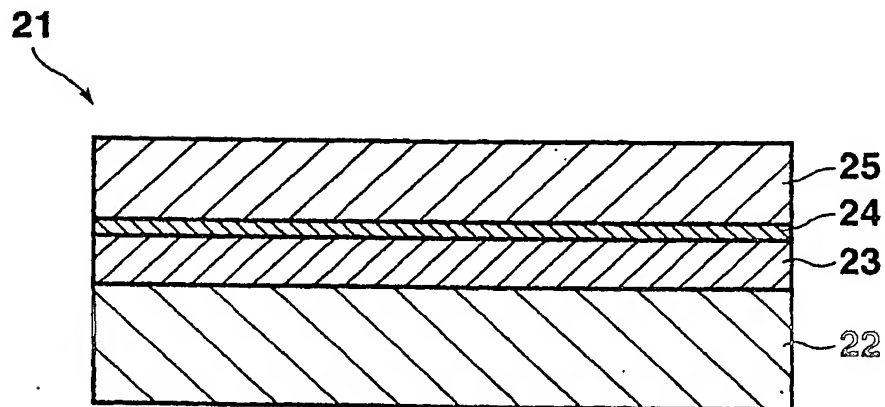
- 6 1 電極基板
- 6 2 透明フィルム
- 6 5 陽電極層
- 6 6 有機材料層
- 6 8 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 7 1 有機エレクトロルミネッセンス素子
- 8 1 電極フィルム
- 9 1 電極フィルム
- 1 0 1 電極フィルム

【書類名】 図面

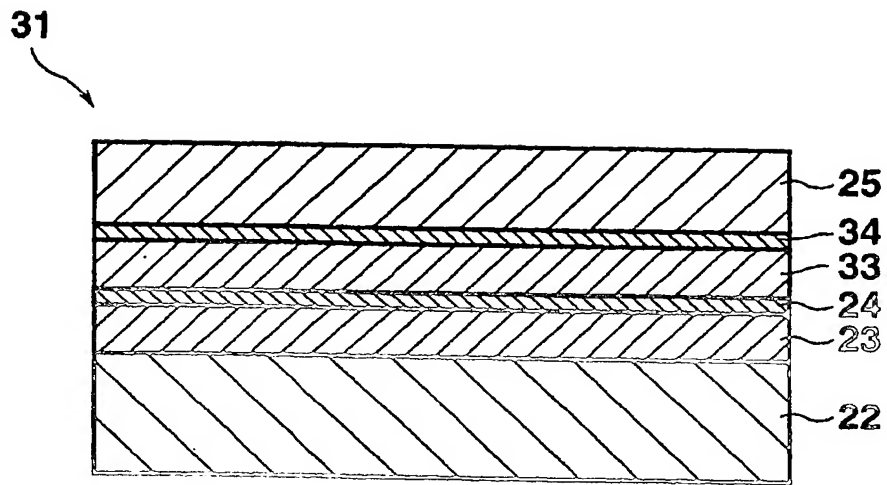
【図 1】



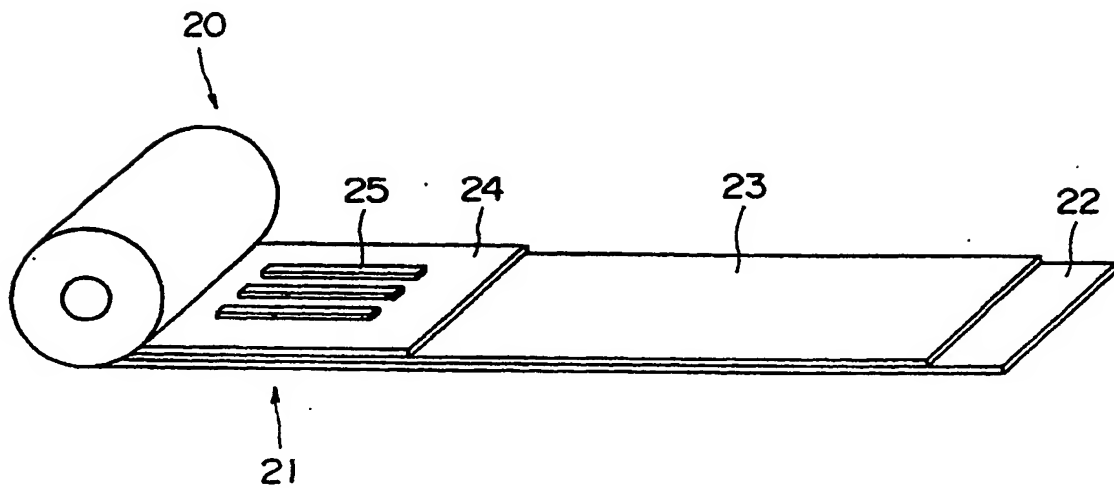
【図 2】



【図 3】

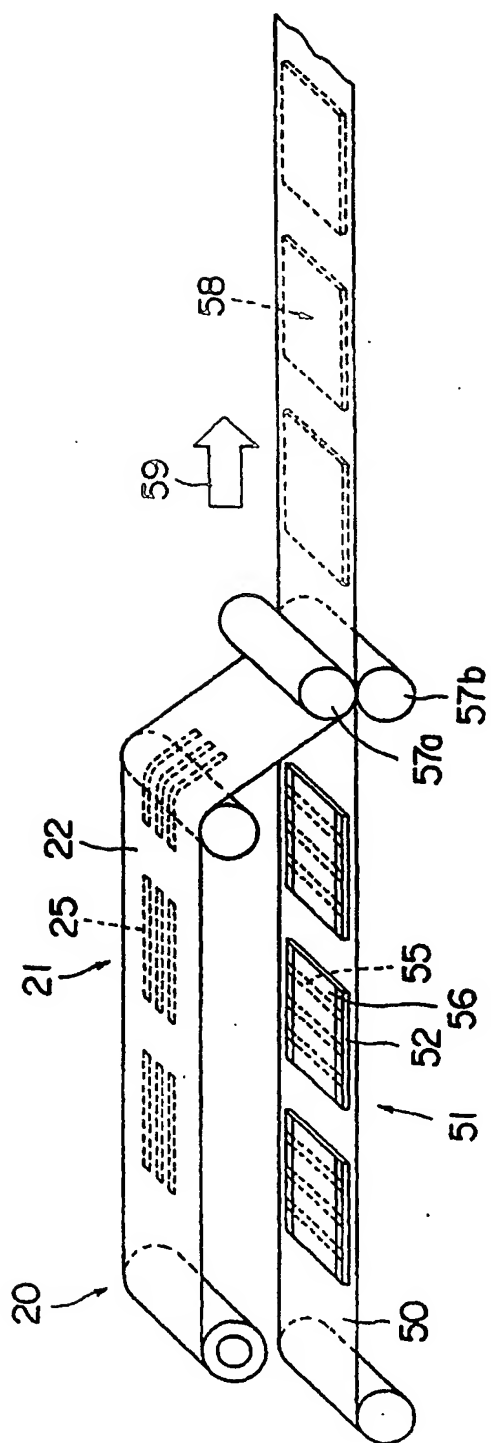


【図 4】

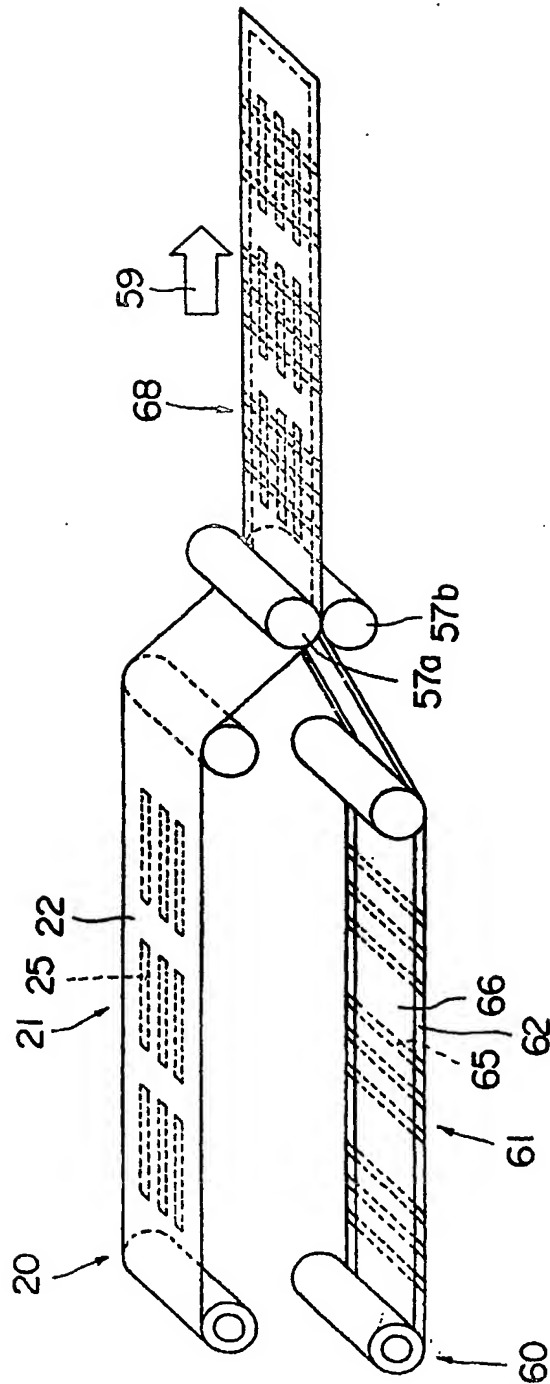




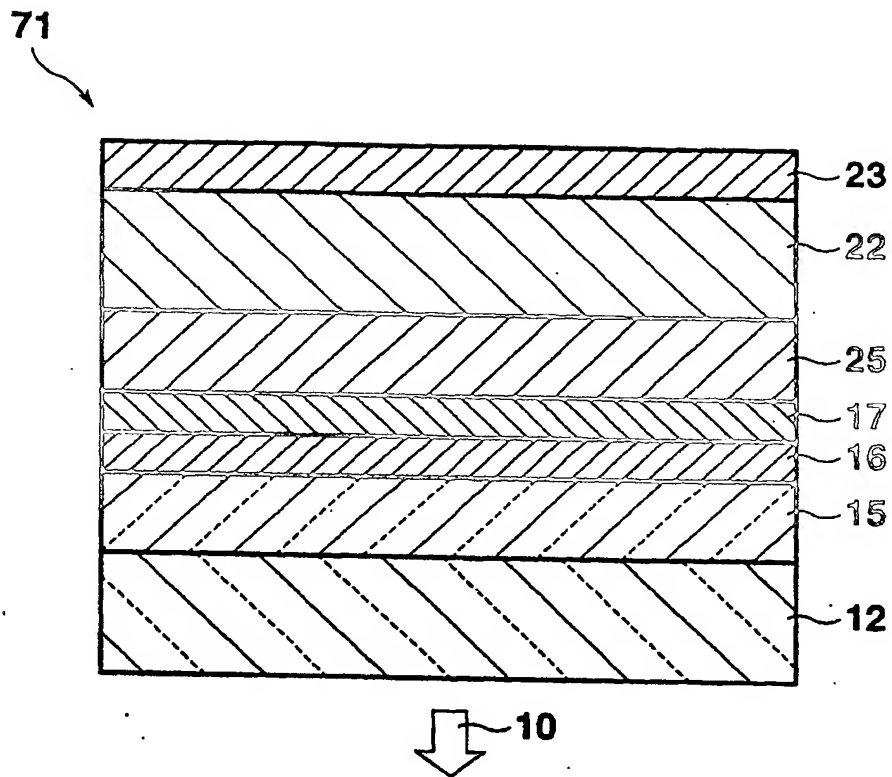
【図 5】



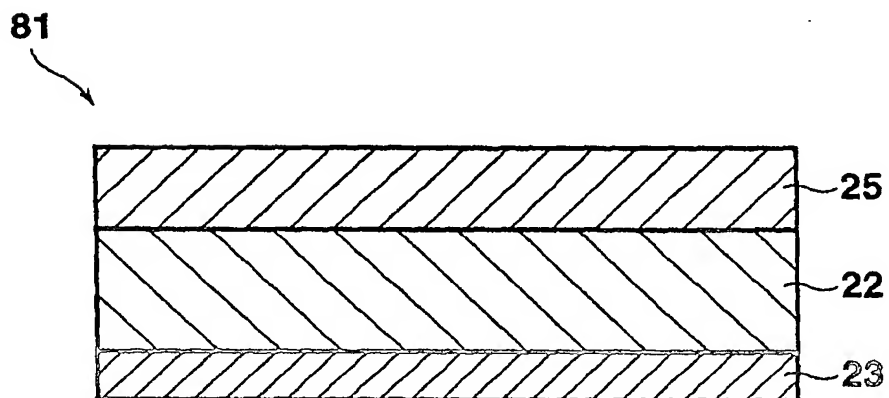
【図 6】



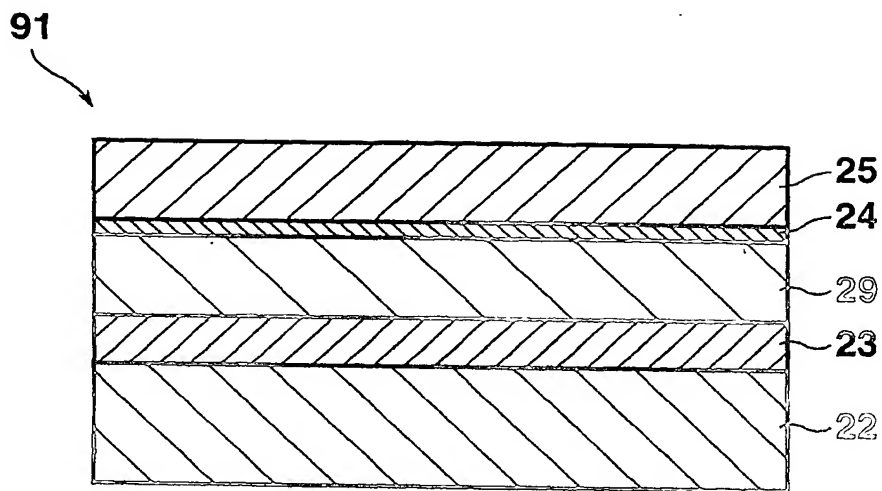
【図 7】



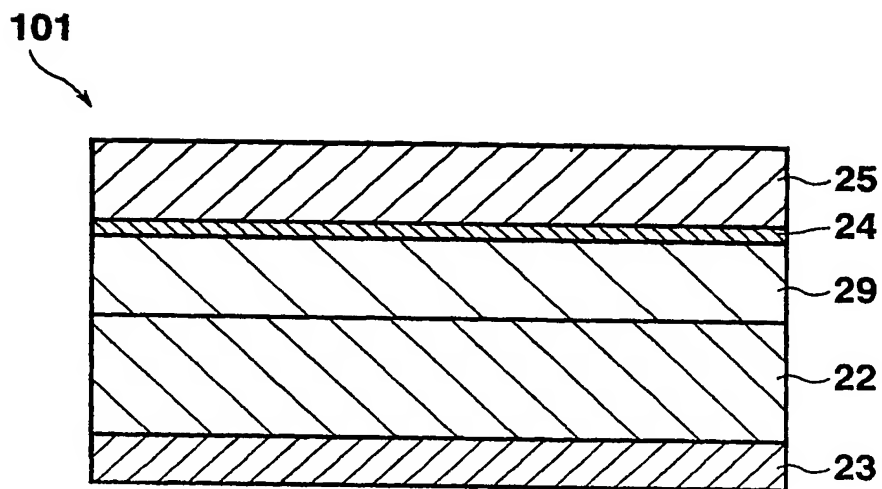
【図 8】



【図 9】



【図 10】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 発光素子内部への水分の侵入が抑制された有機エレクトロルミネッセンス素子を提供すること。

【解決手段】 透明基板の表面に、透明電極層、有機発光材料層を含む有機材料層、不透明電極層、絶縁層、金属層、そして樹脂フィルムがこの順に積層された構成の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【選択図】 図 1

特願 2004-056606

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[599114025]

1. 変更年月日

1999年 8月12日

[変更理由]

新規登録

住 所

長野県上田市中央3-14-2-602

氏 名

谷口 彬雄

特願 2 0 0 4 - 0 5 6 6 0 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 2 1 9 6 0 2 ]

1. 変更年月日	1 9 9 9 年 1 1 月 1 5 日
[変更理由]	住所変更
住 所	愛知県小牧市東三丁目 1 番地
氏 名	東海ゴム工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**